УДК 621.181.6

DOI: 10.26583/npe.2022.2.09

# ПРОБЛЕМЫ ВЫВОДА ИЗ ЭКСПЛУАТАЦИИ БЫСТРЫХ РЕАКТОРОВ И ПУТИ ИХ РЕШЕНИЯ НА БАЗЕ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО РЕАКТОРА БР-10

**В.Б. Смыков**A0 «ГНЦ РФ – ФЭИ»
249033, Калужская обл., г. Обнинск, пл. Бондаренко, 1



В ГНЦ РФ — ФЭИ на ИР БР-10 осуществлены разработка и применение новых безопасных технологий переработки РАО отработавших щелочных жидкометаллических теплоносителей (Na, NaK, NaKHg): твёрдофазное окисление (ТФО) шлаком медеплавильного производства для сдренированных щелочных металлов; газофазная нейтрализация (ГФН) недренируемых щелочных металлов; жидкометаллическая хроматография (ЖМХ) для выделения и нейтрализации ртути из щелочных металлов. Создано и введено в эксплуатацию новое оборудование для их практической реализации — модуль МАГМА-ТФО, модуль ЛУИЗА-РАО, модуль ГЕТТЕР в составе опытно-промышленной установки. Безопасность технологий и оборудования обеспечивается практическим отсутствием выделения водорода при переработке РАО щелочных металлов.

**Ключевые слова:** отработавший щелочной жидкометаллический теплоноситель (ЩЖМТ), ИР БР-10, технологии переработки ЩЖМТ, твердофазное окисление, модуль МАГМА-ТФО, газофазная нейтрализация, модуль ЛУИЗА-РАО, жидкометаллическая хроматография, магниевый сорбент, модуль ГЕТТЕР.

#### **ВВЕДЕНИЕ**

Вывод ЯЭУ из эксплуатации является завершающим этапом её «жизненного» цикла после окончательного останова. Сам по себе этап вывода из эксплуатации по характеру работ мало зависит от типа реактора, так как в период окончательного останова из реактора должно быть выгружено и вывезено с площадки отработанное ядерное горючее, проведена дезактивация первого контура, переработаны и кондиционированы радиоактивные среды и радиоактивное оборудование для их передачи на долговременное безопасное хранение или захоронение у национального оператора РАО. Для быстрого реактора период окончательного останова осложняется и удлиняется в связи с необходимостью максимально безопасного обращения с отработанными радиоактивными (по <sup>137</sup>Сs) щелочными теплоносителями, которые кроме радиоактивности являются пожаровзрывоопасными веществами в отличие от других теплоносителей. Если безопасные технологии переработки и кондиционирования щелочных теплоносителей отсутствуют, то ЯЭУ с быстрым реактором становится «ядерным наследием» на три столетия, что противоречит действующему законодательству РФ в области атомной энергии.

ИР БР-10 (ГНЦ РФ – ФЭИ, г. Обнинск) был окончательно остановлен в декабре 2002 г. после 43-х лет эксплуатации. В соответствии с решением Минатома 1997 г. (Приказ №130 от 05.03.1997) на базе остановленного ИР БР-10 предписано создать научно-технический полигон для «отработки технологий вывода из эксплуатации быстрых реакторов».

В настоящее время ИР БР-10 эксплуатируется в режиме окончательного останова (подготовительный этап к выводу из эксплуатации). Вид центрального (реакторного) зала дан на рис. 1.

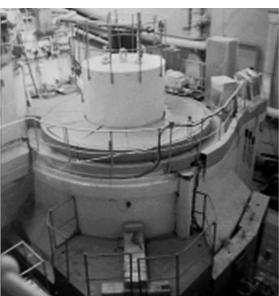


Рис. 1. Исследовательский реактор БР-10

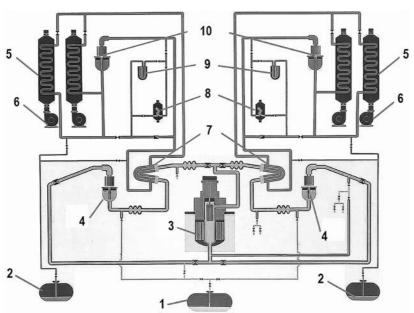


Рис. 2. Схема основного оборудования первого и второго контуров ИР БР-10: 1 – сливной бак теплоносителя первого контура; 2 – сливные баки теплоносителя второго контура; 3 – реактор; 4 –ГЦН первого контура; 5 – воздушный теплообменник натрий-воздух; 6 – воздушные насосы; 7 – теплообменники первого и второго контура; 8 – дополнительные теплообменники второго контура; 9 – холодные ловушки окислов второго контура; 10 – циркуляционные насосы второго контура

В 2003 г. последняя активная зона реактора была выгружена, все ОТВС (топливо – мононитрид урана UN) размещены в отдельные пеналы, залиты натрием и вывезены в хранилище ОЯТ на территории ГНЦ РФ – ФЭИ. Натрий первого и второго контуров был дренирован в сливные баки. Принципиальная технологическая схема оборудования первого и второго контуров реактора БР-10 приведена на рис. 2. В связи с очень удачной конструкцией реактора и первого контура в них отсутствовали «карманы», тупики, горизонтальные участки трубопроводов и прочее, что обеспечило практически полное дренирование натрия. Остатки натрия содержались только в его плёнке на внутренних поверхностях оборудования, которая удалялась вакуумной отгонкой при 400 – 450°С, а остатки «плёночного» натрия были нейтрализованы парогазовой продувкой. Затем весь первый контур был химически дезактивирован. В период 2012 – 2016 гг. были отмыты от натрия более 600 ОТВС ИР БР-10 (пять активных зон) и отправлены на переработку на ПО «МАЯК» [1].

#### ОБЪЁМ И СОСТАВ НАКОПЛЕННЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ЩЕЛОЧНЫХ ТЕПЛОНОСИТЕЛЕЙ

За годы эксплуатации на ИР БР-10 (1959 – 2002 гг.) накопилось примерно 18 – 19 м³ щелочного металла (Na, сплав Na-K с примесью ртути), использовавшегося в качестве жидкометаллического теплоносителя в первом и во втором контурах реактора и в отдельном оборудовании: сливной бак первого контура, баки длительного хранения (БДХ) № 1 (сплав Na-K с примесью ртути до 7,5% масс.) и № 2 (сплав NaK с примесью ртути 0,2% масс.), сливные баки первой петли второго контура, второй петли второго контура, транспортные ёмкости натрия, экспериментальные устройства, пеналы хранения отработавших тепловыделяющих сборок (ОТВС), отработанные холодные ловушки окислов (ХЛО) первого и второго контуров (18 штук, заполненные натрием) и др. Эти отходы щелочных металлов образовались в результате трёхкратной замены теплоносителей в реакторе. Химический и радионуклидный состав отработавших щелочных теплоносителей показан на рис. 3.



Рис. 3. Состав отходов щелочных теплоносителей на ИР БР-10

25 лет назад, когда разрабатывался проект вывода из эксплуатации ИР БР-10, переработка и кондиционирование накопленных отработанных щелочных теплоносителей представлялась трудноразрешимой задачей. Поэтому в проекте отсутствовала технологическая часть по обращению со щелочными металлами. Кроме того на реакторе имелся негативный опыт нейтрализации оборудования с остатками натрия пароводяными технологиями, которые казались простыми, дешевыми и управляемо-безопасными, так как испытывались и применялись на натриевых стендах. Но в ноябре 1979 г. при отмывке пароводяной средой от остатков натрия отработанной нерадиоактивной ХЛО в отдельном боксе отмывки оборудования произошел взрыв выделившегося водорода, и здание бокса было практически полностью разрушено (рис. 4). К счастью, люди не пострадали, но крыша здания была унесена взрывом более чем на 100 м [2,3].



Рис. 4. Последствия взрыва водорода при использовании пароводяного способа нейтрализации остатков натрия в XЛО (фото 1979 г.).

#### ТЕХНОЛОГИЯ ТВЁРДОФАЗНОГО ОКИСЛЕНИЯ ЩЕЛОЧНЫХ ТЕПЛОНОСИТЕЛЕЙ

В ГНЦ РФ — ФЭИ начался поиск более безопасных методов и способов нейтрализации и переработки радиоактивных щелочных теплоносителей для ИР БР-10, который закончился в 1999 г. выбором метода твёрдофазного окисления (ТФО) для переработки натрия и сплава натрий-калий гранулированным шлаком медеплавильного производства Карабашского абразивного завода (Челябинская область). Для создания и отработки технологии на базе метода ТФО был создан стенд МИНЕРАЛ-30. От альтернативных предложений, которые использовали водные растворы (в том числе щелочные) или различные спирты (этиловый, пропиловый, гликоли, бутилцеллозольв и др.), было решено отказаться из-за неизбежного выделения взрывоопасного водорода при их реакции со щелочными металлами.

Кроме того альтернативные предложения требовали многостадийного обращения с промежуточными жидкими РАО и сложного оборудования для последующей их переработки в конечный твёрдый продукт, например, в цементный камень. В итоге объём конечного продукта возрастал в 10-15 и более раз по сравнению с исходным объёмом щелочного металла, так как получаемый концентрированный щелочной раствор (10-11 моль NaOH/л) напрямую не цементируется и требует либо разбавления, либо кислотной нейтрализации. А для обеспечения водородной безопасности требовалось разбавление выделяющегося водорода инертным газом (например, азотом) до приемлемого уровня (около 1% объёма), т.е. в 100 раз. При растворении 1 кг Na в воде выделяется 0.5 м $^3$  10.2 м это существенные дополнительные материальные и капитальные затратить 100 м100 м100 м100 метоного металла на 100 метоного металла из рассмотрения «цены вопроса» у авторов этих альтернативных предложений.

Экспериментальная отработка выбранного способа ТФО натрия и сплава натрий-калий на стендах МИНЕРАЛ-3 и МИНЕРАЛ-30 показала, что положительными характеристиками созданной технологии ТФО являются

- практическое отсутствие выделения водорода в защитный газ (аргон);
- одностадийность процесса получения конечного твёрдого продукта, т.е. без обра-

зования промежуточных жидких РАО, требующих дополнительной переработки;

- щелочной металл перерабатывается полностью, в продукте переработки отсутствуют следы свободного щелочного металла, вероятные пары металла поглощаются и нейтрализуются верхним слоем избыточного шлака;
- отсутствие необходимости применения механизмов для смешения реагентов гранулированного шлака и щелочного металла;
- конечный продукт представляет собой твёрдый минералоподобный камень, не растворимый в воде, который в реакционной ёмкости может быть помещён в контейнер НЗК-1,5 и далее передан на длительное безопасное хранение и захоронение;
- объём конечного твёрдого продукта переработки щелочного металла превышает исходный объём щелочного металла только в три раза;
- не требуется дополнительная очистка щелочного металла от радиоизотопа <sup>137</sup>Cs, так как он при реакции с компонентами шлака образует те же самые нелетучие алюмосиликаты, что и натрий (калий), и иммобилизуется в матрице конечного продукта;
- исходный гранулированный шлак не требует дополнительной химической корректировки исходного состава, нужна только предварительная термическая обработка в инертной атмосфере для удаления летучих примесей, в том числе кристаллизационной воды;
- собственно процесс ТФО щелочного металла проходит за 10 15 минут, а в остальное время происходит естественное охлаждение полученного продукта в реакционной емкости [4, 5].

Физико-химическая основа технологии ТФО заключается в экзотермическом взаимодействии щелочного металла и основных компонентов шлака медеплавильного производства. Данный шлак представляет собой гранулированное аморфное тело, аналогичное стеклу. Состав шлака приведён в табл. 1. Схема прохождения экзотермической реакции шлака с натрием предполагается следующей:

38Na + [(Fe0)<sub>20</sub>·(Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)·(SiO<sub>2</sub>)<sub>24</sub>·(CaO)<sub>12</sub>·(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)·(ZnO)] 
$$\rightarrow$$
 [19Na<sub>2</sub>O·SiO<sub>2</sub>] + 17Fe + 5FeO + Zn+ 5SiO<sub>2</sub> + + [(CaO)<sub>12</sub>·(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>2</sub>] +  $Q$  (3MДж/кг Na).

Таблица 1 Химический состав шлака медеплавильного производства

ии состав шлака медеплавильного про	
Химическое соединение	Содержание, %
FeO	36 – 38
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1 – 2
SiO <sub>2</sub>	36 – 40
CaO	6 – 14
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5 – 7
ZnO	до 1.5
CuO	менее 0.5



Рис. 5. Внешний вид продукта ТФО натрия (стальная оболочка реакционной ёмкости удалена)

В результате экзотермической реакции ТФО выделяется значительное количество тепловой энергии (3 МДж/кг Na), поэтому продукт реакции достигает жидкоплавкого состояния при 1100 – 1200°С, а после охлаждения является практически беспористым монолитным камнем. Твёрдость продукта соответствует седьмому классу по шкале твёрдости минералов по Моосу (11,2 ГПа). Типичный внешний вид полученного твёрдого продукта ТФО натрия представлен на рис. 5.

В процессе отработки технологии была экспериментально доказана водородная пожаровзрывобезопасность процесса ТФО, установлены безопасные исходные температурные диапазоны реагентов и обоснована возможность применения углеродистой стали для оболочки реакционной ёмкости вместо аустенитной нержавеющей стали, которая оказалась нестойкой. На основании полученных результатов был разработан, изготовлен и пущен в эксплуатацию модуль МАГМА-ТФО производительностью переработки 50 л радиоактивного натрия за одну загрузку [6, 7].

## ПРОБЛЕМА НЕДРЕНИРУЕМЫХ ОСТАТКОВ ЩЕЛОЧНЫХ ТЕПЛОНОСИТЕЛЕЙ И ЕЁ РЕШЕНИЕ ТЕХНОЛОГИЕЙ ГАЗОФАЗНОГО ОКИСЛЕНИЯ ЗАКИСЬЮ АЗОТА

Следующей проблемой, стоявшей перед ИР БР-10, была необходимость обезвреживания и нейтрализации остатков натрия в отдельном оборудовании после слива основной массы щелочного металла. В первую очередь это касается отработанных холодных ловушек окислов (ХЛО), на ИР БР-10 их накопилось 16 штук первого контура и две ХЛО второго контура, которые хранились заполненные натрием во всем их внутреннем объёме (200 л). Если основную массу натрия из ХЛО можно было слить в баки хранения, то недренируемый остаток (количество которого заранее неизвестно) должен быть химически полностью нейтрализован, безопасно растворён водой и слит в монжусы, а затем перекачен на упаривание в специальной установке. Только в этом случае радиоактивный металл ХЛО может быть передан на длительное хранение или захоронение в хранилище ТРО. Учитывая негативный предыдущий опыт обращения с ХЛО, от применения водных или органических растворителей было решено отказаться. Вместо них в ГНЦ РФ – ФЭИ было предложено использовать газообразную закись азота  $N_2O$  («веселящий газ»). Лабораторные исследования взаимодействия  $Na c N_2 O$  показали, что начиная c $200^{\circ}$ С идёт медленная реакция с образованием газообразного  $N_2$  и сухого порошка, состоящего из смеси Na<sub>2</sub>O, NaNO<sub>2</sub>, NaNO<sub>3</sub> (все эти вещества хорошо известны и растворимы в воде), выделение водорода отсутствует. Установлено, что нейтрализация Na закисью азота протекает по следующим реакциям:

$$2\text{Na} + \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{Na}_2\text{O} + \text{N}_2 + \Delta Q_1;$$

$$\text{Na}_2\text{O} + \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{Na}_2\text{N}_2\text{O}_2 - \Delta Q_2;$$

$$4\text{Na}_2\text{N}_2\text{O}_2 \rightarrow 3\text{Na}_2\text{O} + \text{Na}\text{NO}_2 + \text{Na}\text{NO}_3 + 3\text{N}_2 + \Delta Q_3.$$

Реакции закиси азота со сплавом NaK аналогичные, но проходят при более низкой температуре и с меньшим тепловым эффектом. Кроме того, лабораторные исследования показали, что гидрид натрия (одна из накапливаемых в XЛО примесей) также взаимодействует с закисью азота и нейтрализуется с выделением азота по реакции:

 $NaH + N_2O \rightarrow NaOH + N_2 + \Delta Q_4$  (реакция с тритидом натрия NaT аналогичная).

Таким образом, можно достичь химической фиксации трития в виде устойчивого вещества — твёрдой щелочи NaOT и предотвратить его выделение в защитный газноситель.

Основные технологические параметры процесса взаимодействия Na с  $N_2$ О были отработаны экспериментально на стендах ЛУИЗА и ЛУИЗА-Т (ИР БР-10). Таким образом, было разработано научно-техническое обоснование для безопасного обезвреживания

недренируемых остатков щелочного металла в отдельном оборудовании ИР БР-10 (ХЛО, баки, сильфоны, трубопроводы). В 2006 г. газовые смеси на основе  $N_2$ О были успешно использованы для нейтрализации остатков натрия во второй петле второго контура без демонтажа и разборки петли на отдельное оборудование.

На основании полученного опыта и достигнутых результатов был разработан, изготовлен и пущен в эксплуатацию модуль ЛУИЗА-РАО в реакторном зале ИР БР-10 для обезвреживания недренируемых остатков радиоактивного натрия в отработанных ХЛО первого контура и в сливных баках второго и первого контуров [8 – 10].

#### УДАЛЕНИЕ РТУТИ ИЗ ОТХОДОВ ЩЕЛОЧНЫХ МЕТАЛЛОВ

Основной и наиболее трудной для ИР БР-10 была проблема предварительного удаления Нд из сплава NaKHg в БДХ-1, содержание которой составляет 7,5% (масс.). В БДХ-2 её содержание мало и составляет 0,02%(масс.). Ртуть в щелочном металле появилась в результате неудачного эксперимента — разрушения опытного двухстеночного парогенератора с ртутным контактным слоем, в результате которого вся ртуть попала в теплоноситель NaK, который был слит в БДХ-1. Предварительные исследования содержимого БДХ-1 и БДХ-2 показали, что ртуть равномерно распределена в сплаве, так как образует амальгамы (интерметаллидные соединения) со щелочными металлами.

Химия двойных щелочных амальгам сложная, но хорошо изученная — имеются диаграммы состояния всех щелочных металлов со ртутью, в том числе диаграмма тройного сплава Na-K-Hg. Из анализа этих диаграмм был сделан вывод, что ртуть связана в амальгаму с натрием, а его избыток присутствует в виде сплава с калием в неэвтектическом составе. Опыты с попытками термической отгонки ртути из тройного сплава NaKHg подтвердили это предположение — ртуть отгонялась в паровую фазу (и далее конденсировалась в холодильнике) в виде амальгамы с натрием, но далеко не полностью — максимум на 30%. Поэтому от такого способа удаления ртути из щелочного металла отказались.

Решение было найдено в области жидкометаллической хроматографии – в качестве селективного к ртути сорбента был предложен металлический магний при температуре прокачки через него тройного сплава NaKHg 360 − 380°С. При этом имеет место следующая необратимая реакция [11]:

NaKHg (
$$\kappa$$
.) + 4 Mg ( $\tau$ в.)  $\rightarrow$  Mg<sub>4</sub>Hg ( $\tau$ в.) + NaK ( $\kappa$ .).

Лабораторные исследования показали принципиальную правильность выбора этого метода, а стендовые испытания на ИР БР-10 дали весьма обнадёживающий практический результат — при однократной фильтрации сплава NaKHg через магниевый сорбент степень очистки сплава от ртути достигала 96 — 98%.

В дальнейших исследованиях было показано, что насыщенный ртутью магниевый сорбент можно безопасно утилизировать, выделив из него ртуть в виде нерастворимого твёрдого осадка, состоящего из киновари HgS (природный минерал).

На основании полученных результатов был разработан, изготовлен и смонтирован на ИР БР-10 модуль ГЕТТЕР.

## ОПЫТНО-ПРОМЫШЛЕННАЯ УСТАНОВКА ДЛЯ ПЕРЕРАБОТКИ НАКОПЛЕННЫХ НА ИР БР-10 ОТХОДОВ ЩЕЛОЧНЫХ ТЕПЛОНОСИТЕЛЕЙ

Опытно-промышленная установка (ОПУ) была сдана в эксплуатацию в 2015 г. в составе модулей ГЕТТЕР, МАГМА-ТФО и ЛУИЗА-РАО. Переработка щелочных ЖМТ начата в 2016 г.

Сначала на модуле МАГМА-ТФО перерабатывается натрий второго контура, а на стенде ЛУИЗА-Т обезвреживаются обе отработанные ХЛО второго контура как наименее радиоактивные среды (отсутствует <sup>137</sup>Cs). Затем на модуле ЛУИЗА-РАО идёт обезвреживание ХЛО первого контура, а слитый из них радиоактивный натрий направляется на промежуточное хранение в сливные баки первого контура. На следующем этапе на модуле МАГМА-ТФО перерабатывается натрий первого контура из сливных баков первого контура (рис. 6). На заключительном этапе на модуле ГЕТТЕР последовательно очищается от ртути щелочной металл из БДХ-2, а затем из БДХ-1. Очищенный от ртути сплав NaK направляется на переработку на модуль МАГМА-ТФО. Одновременно с заключительным этапом переработки на модуле ЛУИЗА-РАО будет проводиться обезвреживание недренируемых остатков натрия в сливных баках второго и затем первого контура.

Модуль ГЕТТЕР предназначен для предварительной очистки отработанного щелочного сплава NaK из БДХ-1 и БДХ-2 от примесей ртути путём фильтрования через гранулированный магний. Далее очищенный от ртути сплав NaK подаётся на переработку в модуль МАГМА-ТФО.



Рис. 6. Реакционные ёмкости с переработанным натрием первого контура (по 50 л) на модуле МАГМА-ТФО перед погрузкой в контейнеры H3K-150-1,5

Модуль МАГМА-ТФО предназначен для переработки щелочного ЖМТ в твёрдый минералоподобный продукт, пригодный для длительного хранения или захоронения, и состоит из печей НАКАЛ (служит также саркофагом для локализации последствий нештатных ситуаций), промежуточных баков — дозаторов щелочного металла, газовой системы, информационно-управляющей системы, системы выгрузки и загрузки реакционных емкостей, транспортной системы и другого оборудования. Технология ТФО не сопровождается образованием взрывоопасного водорода в отличие от водных технологий, что обеспечивает пожаровзрывобезопасность технологии ТФО, состав защитного газа (аргона) анализируется газохроматографическим прибором. Начиная с 2016 г. на модуле МАГМА перерабатывались щелочные ЖМТ из сливных баков первого и второго контуров, к настоящему времени переработка натрия первого и второго контуров закончена.

Модуль ЛУИЗА-РАО (рис. 7а) предназначен для очистки (нейтрализации) в оборудовании (например, в ХЛО, в баках и др.) недренируемых остатков щелочного ЖМТ (натрия первого контура) методом газофазного окисления (ГФО) газовыми смесями на основе закиси азота путём циркуляции газа-реагента через внутреннюю полость очищаемого оборудования с остатками натрия. Продуктом нейтрализации является химически безопасные соли натрия, а также газообразный азот, по выделению которого в газ-носитель (аргон) ведётся газоаналитический контроль процесса обезвреживания. Данный метод нейтрализации не сопровождается выделением взрывоопасного водорода, что обеспечивает пожаровзрывобезопасность технологии ГФО.

Две ХЛО второго контура (ХЛО первой и второй петли) обезврежены на стенде ЛУ-ИЗА-Т, затем одна из них в порядке эксперимента была сверху вниз заполнена цементным компаундом (рис. 76). После отверждения цементного компаунда (четыре недели)

в стальной оболочке было вырезано «окно» для контроля полноты заполнения компаундом внутренней полости ХЛО, его достаточной твердости (измеренная величина составила 30 – 40 МПа при нормативе 7 МПа для цементированных жидких РАО) и отсутствия каверн в нем. Достоинством данного способа обезвреживания отработанных ХЛО является отсутствие образования жидких РАО, требующих дополнительной переработки. Однако такая «упаковка» (корпус ХЛО с отверждённой внутренней полостью) пока не принимается для длительного хранения в хранилищах ТРО, так как не помещается в стандартный контейнер НЗК-150-1,5.

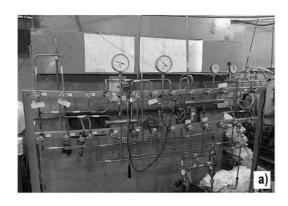




Рис. 7. Внешний газовый циркуляционный контур с управляющими вентилями модуля ЛУИЗА-РАО в реакторном зале ИР БР-10 (a); результаты эксперимента по омоноличиванию содержимого ХЛО второго контура после нейтрализации в ней остатков натрия с примесями (б)

Полное дренирование Na из XЛО технически невозможно, поэтому после дренирования Na и переработки его на модуле MAГMA-ТФО в каждой XЛО остается 20 — 30 л Na с примесями (из исходных 200 л). Для нейтрализации этого недренируемого Na используется модуль ЛУИЗА-РАО, на котором в 2016 г. начата работа по обезвреживанию XЛО 1 контура, к настоящему времени обезврежено 10 XЛО первого контура из 16-ти, хранившихся длительное время в специальном помещении. Образовавшиеся соли натрия в XЛО растворяются водой и раствор сливается в монжусы. Но растворение продуктов нейтрализации Na в XЛО ведет к образованию жидких PAO, требующих последующей переработки в ЦРО [12]. В дальнейшем корпуса обезвреженных XЛО будут фрагментированы, помещены в контейнеры H3K-150-1,5 и залиты бетоном. Затем контейнер направляется в хранилище TPO.

#### выводы

- 1. В ГНЦ РФ ФЭИ на ИР БР-10 осуществлены разработка и реализация новых безопасных технологий переработки РАО отработанных щелочных жидкометаллических теплоносителей (Na, NaK, NaKHq):
- твёрдофазного окисления (ТФО) шлаком медеплавильного производства для сдренированных щелочных металлов,
  - газофазной нейтрализации (ГФН) недренируемых щелочных металлов,

- жидкометаллической хроматографии (ЖМХ) для выделения и нейтрализации ртути из щелочных металлов.
- 2. Создано и введено в эксплуатацию новое оборудование для их практической реализации модуль МАГМА-ТФО, модуль ЛУИЗА-РАО, модуль ГЕТТЕР в составе опытно-промышленной установки. Безопасность технологий и оборудования обеспечивается практическим отсутствием выделения водорода при переработке РАО щелочных металлов.
- 3. К 2023 г. предлагается создать и ввести в эксплуатацию на ИР БР-10 более производительную установку МИНЕРАЛ-100/150 разовой производительностью 100-150 л натрия за один цикл с учётом перспективы её востребованности для вывода из эксплуатации БОР-60 (НИИАР) и БН-600 (Белоярская АЭС). В 2021 г. начато сотрудничество между ГНЦ РФ ФЭИ и ТОО «МАЭК-Казатомпром», г. Актау по выводу из эксплуатации РУ БН-350
- 4. После вывода из эксплуатации ИР БР-10 в здании реактора планируется создать научно-технический полигон для отработки масштабированных технологий и оборудования для вывода из эксплуатации быстрых реакторов России.

#### Литература

- 1. Кононюк М.Х., Смыков В.Б., Лукьянов А.А., Багдасаров Ю.Е. Разработка технологии переработки РАО щелочных теплоносителей методом ТФО. // Избранные труды ФЭИ, Обнинск 2001. с. 64-67.
- 2. Смыков В.Б., Кононюк М.Х., Лукьянов А.А., Багдасаров Ю.Е., Белинский В.С., Борисов В.В., Крючков Е.А., Кузин В.В., Поплавский В.М., Камаев А.А. Способ переработки щелочного металла, загрязненного радиоактивными примесями, и устройство для его реализации. Патент РФ, № 2200991. 2003. Электронный ресурс: https://www.freepatent.ru/patents/2200991 (дата доступа 25.09.2021).
- 3. Смыков В.Б., Багдасаров Ю.Е., Белинский В.С., Крючков Е.А., Кононюк М.Х. Исследования в обоснование технологии ТФО для перевода в безопасное состояние РАО щелочных ЖМТ реактора БР-10. / Сб. докл. IV Российской конф. по радиохимии «Радиохимия-2003», 20-25 октября 2003 г. Озерск:  $\Pi$ 0 МАЯК, 2003. С. 185-186.
- 4. Смыков В.Б., Крючков Е.А., Багдасаров Ю.Е., Кононюк М.Х., Белинский В.С., Пронин А.А., Сокол П.И., Журин А.В. Кондиционирование РАО щелочных теплоносителей исследовательского реактора БР-10. // Безопасность ядерных технологий и окружающей среды. -2011. № 3. С. 105-109.
- 5. Blynskiy A., Dooley K., Farabee A., Fletcher B., Grandjean J., Grenouillet J., Jones J., Ljubenov V., Negin C., Smykov V., O'Sullivan P.-J., Szilagyi A. IAEA-TECDOC-1769. Treatment of Residual Sodium and Sodium-Potassium from Fast Reactors. Review of Recent Accomplishments, Challenges and Technologies. IAEA, Vienna, 2015. Электронный ресурс: https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/TE-1769\_web.pdf (дата доступа 25.09.2021).
- 6. Smykov V., Butov K., Zhurin A., Komarov Eu. Research Reactor BR-10 Testing Ground for Conditioning of Alkaline Liquid-Metal Coolants Under Decommissioning. / Proc. of the Intern. Conf. IAEA on «Advancing the Global Implementation of Decommissioning and Environmental Remediation Programmes» (IAEA-CN-238), 23-27 May 2016, Madrid, Spain.
- 7. Канухина С.В., Кононюк М.Х., Бутов К.А., Смыков В.Б. Расчетные и экспериментальные исследования метода твердофазного окисления щелочных металлов шлаком медеплавильного производства. // Атомная энергия. 2016. Т. 120. Вып. 6. С. 330-336. Электронный ресурс: https://www.j-atomicenergy.ru/index.php/ae/article/view/518 (дата доступа 25.09.2021).
- 8. Смыков В.Б., Ермолаев Н.П., Саратова И.Г., Орлова Т.А. Экспериментальная отработка технологии применения  $N_2$ О для нейтрализации остатков  $N_2$ 0 для нейтрализации остатков  $N_3$ 0 слава  $N_4$ 1. Г. Докл. IV Российской конф. по радиохимии «Радиохимия-2003», 20-25 октября 2003 г. Озерск:  $N_3$ 10 МАЯК, 2003.  $N_4$ 20 С. 188.
- 9. Смыков В.Б., Лукьянов А.А., Крючков Е.А. Разработка новой технологии очистки оборудования быстрых реакторов от недренируемых остатков натрия путём их нейт-

рализации закисью азота. / Сб. докл. XVIII Менделеевского съезда по общей и прикладной химии, 23-28 сент. 2007 – М.: РАН, 2007. – С. 2541.

- 10. Smykov V.B., Bagdasarov Yu.E., Kryutchkov E.A., Belinsky V.S. Development of Technology of Neutralization of Sodium Residues by Gaseous Dinitrogen Oxide in Cold Trap of the BR-10 Research Reactor on LUIZA Test Facility. / Decommissioning of Fast Reactors after Sodium Draining. IAEA-TECDOC-1633. Vienna, 2009. PP. 9-14.
- 11.  $\mathit{Карабаш\,A.\Gamma., Eordahobuu\,H.\Gamma., Konылов\,B.C., Емельянов\,B.\Pi.}$  Жидкометаллическая хроматография метод сорбционного фильтрования для очистки расплавов металлов и концентрирования примесей / Сб. тез. докл. межотрасл. конф. «Использование жидких металлов в народном хозяйстве» (Теплофизика 91).— Обнинск: ФЭИ, 1993.— С. 118-120.
- 12. Smykov V., Butov K., Kochetkov L., Poplavko V., Zhurin A. Decommissioning of SSC RF-IPPE Facilities Posing Nuclear and Radiation Danger: Current Status and Challenges. / «Decommissioning Challenges: An Industrial Reality and Prospects», Avignon, April 7-11, 2013, France.

Поступила в редакцию 30.09.2021 г.

#### Автор

<u>Смыков</u> Владимир Борисович, заместитель начальника отдела, канд. техн. наук, E-mail: smykov@ippe.ru

UDC 621.181.6

## PROBLEMS OF DECOMISSIONING FAST REACTORS AND WAYS OF THEIR SOLUTION ON THE BASIS OF THE BR-10 RESEARCH REACTOR

Smykov V.B.

IPPE JSC

1 Bondarenko Sq., 249033 Obninsk, Kaluga Reg., Russia ABSTRACT

At the IPPE JSC, the BR-10 research reactor was completely shut down in December 2002 after 43 years of operation. Over the years of operation, BR-10 accumulated approximately  $18-19~\text{m}^3$  of alkali metals (Na of the primary and secondary circuits, Na-K alloy with mercury as an impurity), which were used as a liquid metal coolant in the primary and secondary reactor circuits and in some equipment. These wastes of alkali metals were formed as a result of three replacements of coolants in the reactor.

To process Na and Na-K alloy, the method of solid-phase oxidation (SPO) with dump slag from copper smelting production sites was chosen at BR-10. In the process of developing the technology, the complete processing of Na and Na-K alloy into a solid mineral-like product and the hydrogen safety of the SPO process were experimentally proved. Based on the results obtained, the MAGMA-SPO module with a processing capacity of 50 liters of radioactive Na per load was developed, manufactured and put into operation. The entire volume of radioactive secondary sodium (about 5.4 m³) has been processed at the MAGMA-SPO module, processing of radioactive primary sodium has begun.

To solve the problem of neutralizing Na nondrainable residues in some equipment of the reactor, the use of gas mixtures was investigated; they are based on nitrous oxide  $N_2O$ , which does not generate explosive hydrogen in the course of interaction with sodium. On the basis of the scientific results obtained, the LUIZA-RW module was

developed, manufactured and put into operation for the neutralization of nondrainable residues of radioactive sodium in the spent cold traps of the primary and secondary circuits and in the drain tanks of the secondary and primary circuits. At the LUIZA-RW module, two spent cold traps of the secondary circuit, nine cold traps of the primary circuit and two tanks were neutralized.

To solve the problem of purifying the NaKHg alloy from mercury, a method was found in the field of liquid metal chromatography – metallic magnesium was used as a sorbent selective to mercury when the NaKHg ternary alloy was pumped through it. Research and bench tests of the method gave a very promising practical result: with a single filtration of the NaKHg alloy through a magnesium sorbent, the degree of purification of the alloy from mercury reached 96 – 98%. Based on the results obtained, the GETTER module was developed, manufactured and installed at the BR-10 research reactor. In further studies, it was shown that a magnesium sorbent saturated with mercury can be safely disposed by separating mercury from it in the form of an insoluble solid precipitate consisting of cinnabar HgS (a natural mineral).

**Key words:** spent alkaline liquid metal coolant, BR-10 RR, technologies for processing of alkaline liquid metal coolant, solid-phase oxidation, MAGMA-SPO module, gas-phase neutralization, LUIZA-RW module, liquid metal chromatography, magnesium sorbent, GETTER module.

#### REFERENCES

- 1. Kononyuk M.H., Smykov V.B., Lukianov A.A., Bagdasarov Yu.E. Development of Technology for Processing Radioactive Waste from Alkaline Coolants by the SPO Method. *Selected Papers of IPPE, Obninsk, 2001*, pp. 64-67 (in Russian).
- 2. Smykov V.B, Kononyuk M.H, Lukianov A.A, Bagdasarov Yu.E., Belinsky V.S., Borisov V.V., Kryuchkov E.A., Kuzin V.V., Poplavsky V.M., Kamaev A.A. Method for Processing Alkali Metal Contaminated with Radioactive Impurities and a Device for its Implementation: RF Patent for Invention No. 2200991, 2003. Available at https://www.freepatent.ru/patents/2200991 (accessed Sep. 25, 2021) (in Russian).
- 3. Smykov V.B., Bagdasarov Yu.E., Belinsky V.S., Kryutchkov E.A., Kononyuk M.H. Research in Justification of the SPO Technology to Transfer Radioactive Waste from Alkaline Liquid Metal Coolants of the BR-10 Reactor to a Safe State. *Proc. of the IV-th Russian Conference on Radiochemistry «Radiochemistry-2003», October 20-25, 2003*. Ozersk. PO MAYaK Publ., 2003, pp. 185-186 (in Russian).
- 4. Smykov V.B., Kryutchkov E.A., Bagdasarov Yu.E., Kononyuk M.H., Belinsky V.S., Pronin A.A., Sokol P.I., Zhurin A.V. Conditioning of Radioactive Waste from Alkaline Coolants of the Research Reactor BR-10. *Bezopasnost' Yadernykh Tekhnologij i Okrhuzhayuschey Sredy*. 2011, no. 3, pp. 105-109 (in Russian).
- 5. Blynskiy A., Dooley K., Farabee A., Fletcher B., Grandjean J., Grenouillet J., Jones J., Ljubenov V., Negin C., Smykov V., O'Sullivan P.-J., Szilagyi A. IAEA-TECDOC-1769. Treatment of Residual Sodium and Sodium-Potassium from Fast Reactors. Review of Recent Accomplishments, Challenges and Technologies. IAEA, Vienna, 2015. Available at: https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/TE-1769\_web.pdf (accessed Sep. 25, 2021).
- 6. Smykov V., Butov K., Zhurin A., Komarov Eu. Research Reactor BR-10 Testing Ground for Conditioning of Alkaline Liquid-Metal Coolants Under Decommissioning. *Proc. of the Intern. Conf. IAEA on «Advancing the Global Implementation of Decommissioning and Environmental Remediation Programmes» (IAEA-CN-238)*, 23-27 May 2016, Madrid, Spain.
- 7. Kanukhina S.V., Kononyuk M.H., Butov K.A., Smykov V.B. Computational and Experimental Studies of the Method of Alkali Metals Solid-Phase Oxidation by Copper Smelting Slag. *Atomic Energy*. 2016, v. 120, iss. 6, pp. 403-411; DOI: https://doi.org/10.1007/s10512-016-0149-0.
- 8. Smykov V.B., Yermolaev N.P., Saratova I.A., Orlova T.A. Experimental Testing of the

Technology of Using N<sub>2</sub>O to Neutralize Na and Na-K Alloy Residues. *Proc. of the IV-th Russian Conference on Radiochemistry «Radiochemistry-2003», October 20-25, 2003*. Ozersk. PO MAYaK Publ., 2003, p. 188. (in Russian).

- 9. Smykov V.B., Lukianov A.A., Kryutchkov E.A. Development of the New Technology for Cleaning the Equipment of Fast Reactors from Nondrainable Sodium Residues by Way of their Neutralization by Dinitrogen Oxide. *Proc. of the XVIII Mendeleev Congress on General and Applied Chemistry*, 23-28 Sept. 2007. Moscow, IGIC RAS. Moscow. RAS Publ., 2007, p. 2541 (in Rusian), 2462 (in English).
- 10. Smykov V.B., Bagdasarov Yu.E., Kryutchkov E.A., Belinsky V.S. Development of Technology of Neutralization of Sodium Residues by Gaseous Dinitrogen Oxide in Cold Trap of the BR-10 Research Reactor on LUIZA Test Facility. *Decommissioning of Fast Reactors after Sodium Draining. IAEA-TECDOC-1633*. Vienna, 2009, pp. 9-14.
- 11. Karabash A.G., Bogdanovich N.G., Kopylov V.S., Yemelianov V.P. Liquid Metal Chromatography a Sorption Filtration Method for Purification of Molten Metals and Concentrating Impurities. *Proc. of the Intersectoral Conference «Using of Liquid Metals in the National Economy» (Teplofizika-91)*. Obninsk. FEI Publ., 1993, pp. 118-120 (in Russian).
- 12. Smykov V., Butov K., Kochetkov L., Poplavko V., Zhurin A. Decommissioning of SSC RF-IPPE Facilities Posing Nuclear and Radiation Danger: Current Status and Challenges. «Decommissioning Challenges: An Industrial Reality and Prospects», Avignon, April 7-11, 2013, France.

#### **Author**

<u>Smykov</u> Vladimir Borisovich, Deputy Head of Division, Cand. Sci. (Engineering) E-mail: smykov@ippe.ru